

平成22年 5月11日現在

研究種目：基盤研究(B)
 研究期間：2007～2009
 課題番号：19360430
 研究課題名（和文）電位勾配下におけるベントナイト中のイオンの移行挙動に関する研究
 研究課題名（英文）Study on migration behavior of ions in bentonite under electrical potential gradient
 研究代表者
 出光 一哉 (IDEMITSU KAZUYA)
 九州大学・大学院工学研究院・教授
 研究者番号：10221079

研究成果の概要（和文）：ベントナイト粘土中のイオンの移行挙動は、放射性廃棄物処分の安全評価のため重要であるが、地下の還元環境を模擬した実験は困難であった。また、イオンの中には移行の極めて遅いものがあり、その移行パラメータを現実的な期間で得るための手法が必要とされていた。提案者らは、電気化学的手法を用いて、ベントナイト粘土中に安定な還元環境を生み出し、粘土中のイオンの移動を加速して移行のパラメータを得る手法を開発した。本手法を用いることにより、ベントナイト中に安定した還元環境を生成することに成功し、その環境における鉄イオン、アルカリイオン、アルカリ土類イオンの拡散係数、分散係数を得た。

研究成果の概要（英文）：Migration behavior of ions in bentonite is important for safety assessment of radioactive wastes disposal. However it is difficult to carry out migration experiments under reducing condition like real deep geological disposal. Moreover there are some ions which migrate very slowly in bentonite. Thus a special method is needed to obtain migration parameters within reasonable time and appropriate condition. The proposer has developed the electromigration method to obtain migration parameters of ions in bentonite by acceleration of ions. This method can provide stable reducing condition in bentonite. By using this method we obtained diffusion coefficients and dispersion coefficients of ferrous ion, alkali ions and alkali earth ions under the reducing condition.

交付決定額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
2007年度	6,700,000	2,010,000	8,710,000
2008年度	2,800,000	840,000	3,640,000
2009年度	3,900,000	1,170,000	5,070,000
年度			
年度			
総計	13,400,000	4,020,000	17,420,000

研究分野：工学

科研費の分科・細目：総合工学・原子力学

キーワード：放射性廃棄物、ベントナイト粘土、還元環境、鉄イオン、みかけの拡散係数、分散係数、間隙水 pH

科学研究費補助金研究成果報告書

1. 研究開始当初の背景

- (1) 放射性廃棄物処分においては、廃棄物からの放射性物質の漏洩を最小限にし、生物圏への移動をできるだけ遅らせ、安全を確保するため、多重バリアシステムが採用される。
- (2) 多重バリアシステムでは、廃棄物を固化し、金属容器に密封し、周囲を粘土等で埋め戻し、深部地下に埋設／隔離する。
- (3) 多重バリアの一つである粘土は多くの性能を期待されているが、中でも放射性物質の移行に関するパラメータ（拡散係数）は安全評価上最も重要なものである。
- (4) 地下環境はある深さ以下では酸素の少ない還元環境にあり、酸化還元に敏感な元素はその化学形を変化させ、大気雰囲気とは異なる挙動を示す可能性がある。
- (5) 提案者らは、電気化学的手法を用いて、安定な還元環境を生み出すと共に、移行の加速、移行する化学種の電荷符号の測定法を開発した。

2. 研究の目的

- (1) 本提案では、拡散係数既知の複数の元素を用いて、本実験環境における移行挙動を測定し、拡散係数測定のリファレンスを作ること。
- (2) 拡散場の pH および Eh（電位）測定を行なうこと

3. 研究の方法

- (1) 装置はアクリル製であり、下部に鉄片とステンレス鋼製フィルターに挟まれたベントナイト試料を配置している（図1）。

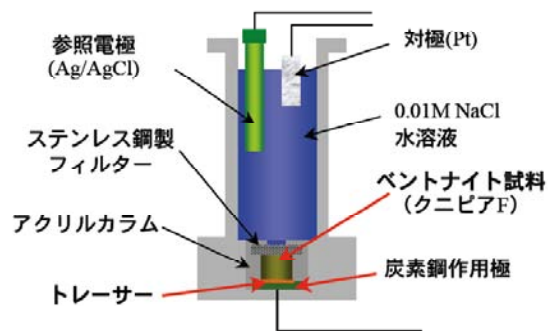


図1 装置の概略図

ベントナイトと鉄片の境界面にトレーサを塗布し、鉄片（炭素鋼）を陽極として通電する。装置上部には参照電極と白金対極を配置しており、通電にはポテンシオスタットを用い定電位で行なう。通電終了した試料をスライスし、酸による目的イオンの抽出を行ない、抽出液中の目的元素の分析を行なうことで、試料中の濃度分布を得る。この濃度分布からイオンの拡散係数を得る。

- (2) 提案者らは、市販の pH 試験紙に表面処理を行なうことで、ベントナイト間隙水中の pH の概略を知る手法を開発している。この方法を用いて、電位のかかったベントナイト試料中の pH の測定を試みる。

4. 研究成果

- (1) 電位をかけたベントナイト試料中のイオンは、電気泳動と分散によって移動する。
- (2) 鉄片からベントナイト試料中への鉄イオンの移動量は、流れた電気量に比例し、その量は鉄が Fe^{2+} として移動しているとして評価できる（図2）。

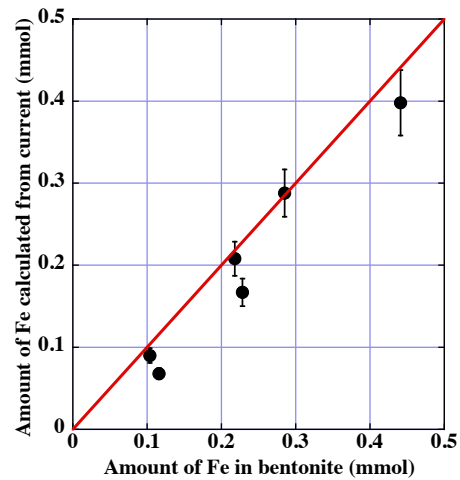


図2 鉄の移動量と流した電気量との相関鉄が2価イオンとして移動していると仮定

- (3) 上記の結果から、逐次鉄片から鉄イオンがベントナイト試料中へ供給されるとしたモデルで鉄イオンの濃度分布を評価できた（図3）。

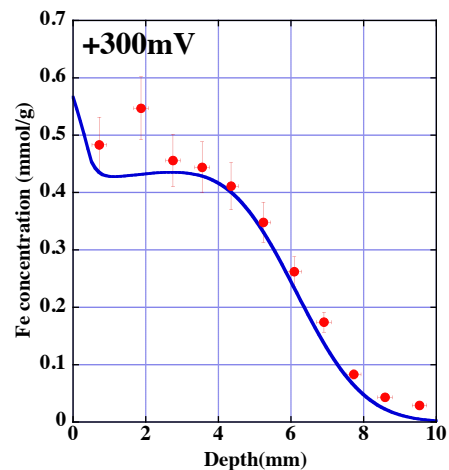


図3 鉄イオンの濃度分布と解析例

(4) 鉄イオンの電気泳動速度と分散係数の関係が図4のように得られた。この結果、鉄のみかけの拡散係数 $10^{-12} \text{m}^2/\text{s}$ と分散長 0.3mm が得られた。

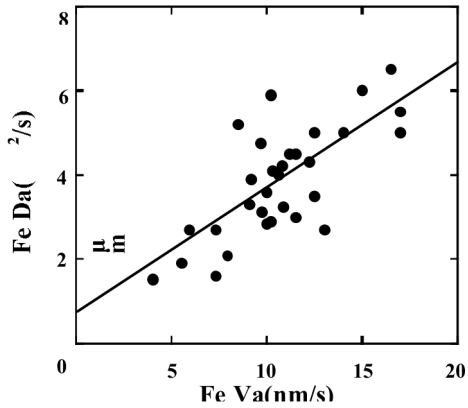


図4 鉄の電気泳動速度と分散係数の関係

(5) アルカリ元素の移動も電気泳動と分散によって表すことができる。図5にカリウムの濃度分布と解析結果を示す。

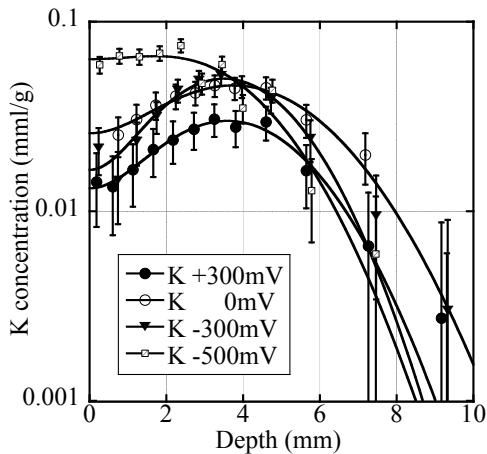


図5 カリウムの濃度分布と解析結果

(6) アルカリ金属K、Rbの電気泳動速度と分散係数の関係を図6に示す。

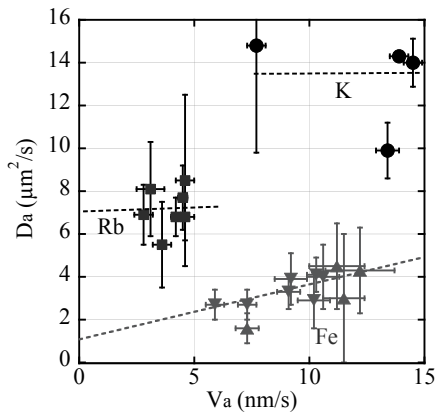


図6 K、Rbの電気泳動速度と分散係数の関係

鉄と異なり、アルカリ金属の分散係数に明確な電気泳動速度依存性は見られない。これは、拡散係数が機械的分散よりも大きく、得られた分散係数がほぼ拡散係数によるためと考えられた。

(7) アルカリ土類金属の移動も電気泳動と分散によって表すことができる。図7にCa、図8にSr、図9にBaの濃度分布と解析結果を示す。

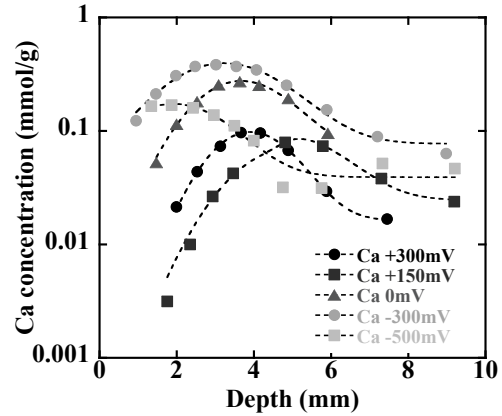


図7 Caの濃度分布と解析結果

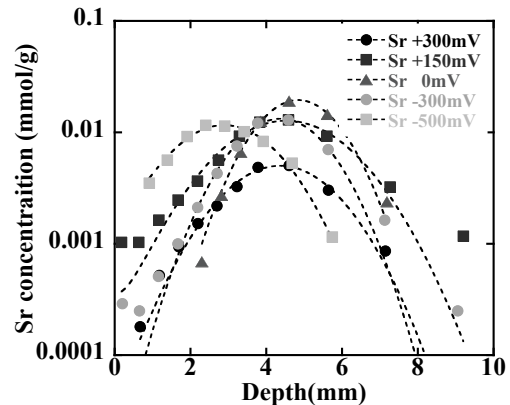


図8 Srの濃度分布と解析結果

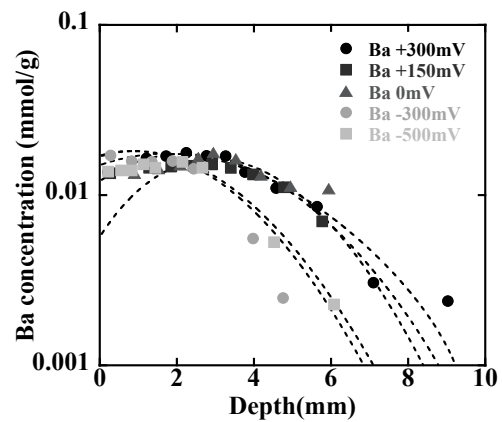


図9 Baの濃度分布と解析結果

(8)アルカリ土類金属 Ca、Sr、Ba の電気泳動速度と分散係数の関係を図 10 に示す。

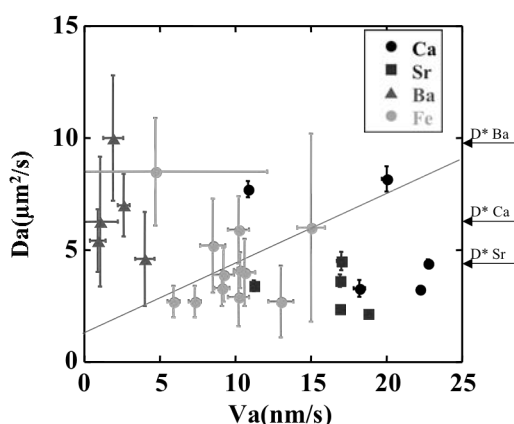


図 10 Ca、Sr、Ba の電気泳動速度と分散係数の関係

アルカリ金属と同様、アルカリ土類金属の分散係数に明確な電気泳動速度依存性は見られず。これは、拡散係数が機械的分散よりも大きく、得られた分散係数がほぼ拡散係数によるためと考えられた。しかしながら、図 10 に示されるように本実験法で得られたアルカリ土類の拡散係数は、電気泳動を伴わない通常の拡散実験によって得られた拡散係数よりも小さな値となっている。このことからアルカリ土類金属は鉄イオンが存在する系において、移動速度が遅くなる傾向があると考えられる。

(9)ベントナイト中の間隙水の pH 測定の様子を図 11~12 に示す。

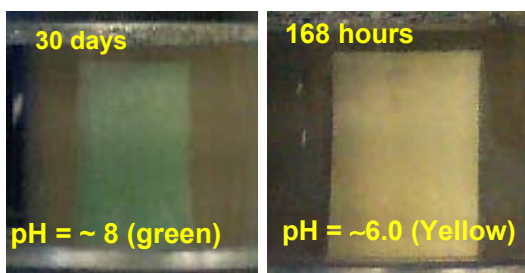


図 11 ベントナイトと接触させた pH 試験紙の色の变化

左:通電していない状態で 30 日後 (pH 8 程度)
右:左の状態から+300mV での通電を 168 時間行った後 (pH 6 程度に変化)

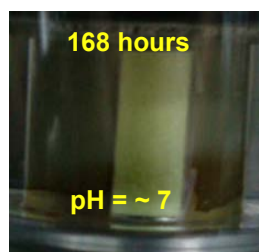


図 12 低い電位 (-400mV) での pH 試験紙の色の变化

鉄イオンが多く入った試験では、ベントナイト間隙水中の pH はやや低下する傾向にあったが、大きく pH を変化させるものではなかった。

5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[雑誌論文] (計 4 件)

- ① K.Idemitsu, Migration Behavior of Plutonium in Compacted Bentonite Under Reducing Condition using Electromigration, Proc. Materials Research Society Symposium on Scientific Basis for Nuclear Waste Management XXX, 査読有, 985, 2007, 443-448
- ② K.Idemitsu, Migration Behavior of Ferrous Ion in Compacted Bentonite under Reducing Conditions Controlled with Potentiostat, Proc. Materials Research Society Symposium on Scientific Basis for Nuclear Waste Management XXXI, 査読有, 1107, 2008, 501-508
- ③ K.Idemitsu, Migration Behavior of Plutonium in Compacted Bentonite Under Reducing Conditions Controlled with Potentiostat, Proc. Materials Research Society Symposium on Scientific Basis for Nuclear Waste Management XXXII, 査読有, 1124, 2009,283-288
- ④ K.Idemitsu, Migration Behavior of Potassium and Rubidium in Compacted Bentonite Under Reducing Condition with Iron Corrosion Product, Proc. Materials Research Society Symposium on Scientific Basis for Nuclear Waste Management XXXIII, 査読有, 1193, 2009,453-460

[学会発表] (計 10 件)

- ① K.Idemitsu, Migration Behavior of Ferrous Ion in Compacted Bentonite under Reducing Conditions Controlled with Potentiostat, Materials Research Society Symposium on Scientific Basis for Nuclear Waste Management XXXI, 平成19年9月19日, 英国シェフィールド市
- ② N.S.Afsarun, Study on the pH of the Pore Water in Compacted Bentonite under Reducing Environment, 日本原子力学会 2007 年秋の大会, 平成 19 年 9 月 28 日, 北九州市
- ③ 山崎 秀, 低電位配下における圧縮ベントナイト中の鉄の移動挙動, 日本原子力学会 2007 年秋の大会, 平成 19 年 9 月 28 日, 北九州市
- ④ N.S.Afsarun, Experimental Study on the p

H of Porewater in Compacted
Bentonite under Reducing Conditions Using
Electromigration, Waste Management 2008,
平成 20 年 2 月 25 日, 米国フェニックス市

- ⑤池内 宏知, 電位勾配下における緩衝材中の
プルトニウムの移行挙動, 日本原子力学
会 2008 年春の年会, 平成 20 年 3 月 26 日, 大
阪市
- ⑥池内 宏知, 電位勾配下における圧縮ベン
トナイト中のセシウムの移行挙動, 日本原
子力学会 2008 年秋の大会, 平成 20 年 9 月 6
日, 高知市
- ⑦ K.Idemitsu, Migration Behavior of Plutoni
um in Compacted Bentonite Under
Reducing Conditions Controlled with
Potentiostat, Materials Research Society
Symposium on Scientific Basis for Nuclear
Waste Management XXXII, 平成 20 年 12 月 3
日, 米国ボストン市
- ⑧ K.Idemitsu, Migration Behavior of Potassium
and Rubidium in Compacted Bentonite Under
Reducing Condition with Iron Corrosion
Product, Materials Research Society
Symposium on Scientific Basis for Nuclear
Waste Management XXXIII, 平成 21 年 5 月
26 日, ロシア サンクトペテルブルグ市
- ⑨秋山 大輔, 電位勾配下におけるベン
トナイト中のアルカリ金属の移行挙動, 日本原
子力学会 2009 年秋の大会, 平成 21 年 9 月
17 日, 仙台市
- ⑩ K.Idemitsu, Migration Behavior of Alkali Earth
Ions in Compacted Bentonite with Iron
Corrosion Product Using Electrochemical
Method, Materials Research Society
Symposium on Scientific Basis for Nuclear
Waste Management XXXIV, 平成 22 年 4 月 7
日, 米国サンフランシスコ市

[図書] (計 0 件)

[産業財産権]

○出願状況 (計 0 件)

○取得状況 (計 0 件)

[その他]

ホームページ等

6. 研究組織

(1) 研究代表者

出光一哉 (IDEMITSU KAZUYA)
九州大学・大学院工学研究院・教授
研究者番号 : 10221079

(2) 研究分担者

稲垣八穂広 (INAGAKI YAOHIRO)
九州大学・大学院工学研究院・准教授

研究者番号 : 80203199
(H19→H20 : 連携研究者)

有馬立身 (ARIMA TATSUMI)
九州大学・大学院工学研究院・助教
研究者番号 : 60264090
(H19→H20 : 連携研究者)

(3) 連携研究者

稲垣八穂広 (INAGAKI YAOHIRO)
九州大学・大学院工学研究院・准教授
研究者番号 : 80203199
(H20 から)

有馬立身 (ARIMA TATSUMI)
九州大学・大学院工学研究院・助教
研究者番号 : 60264090
(H20 から)